Mesures optiques sous ultra-vide à basses températures sur couches minces préparées in situ

V. Nguyen Van, Serge Fisson

► To cite this version:

V. Nguyen Van, Serge Fisson. Mesures optiques sous ultra-vide à basses températures sur couches minces préparées in situ. *Revue de Physique Appliquée*, 1978, 13 (3), pp.155-159. 10.1051/rphysap:01978001303015500 . jpa-00244433

HAL Id: jpa-00244433

<https://hal.science/jpa-00244433>

Submitted on 1 Jan 1978

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification
Physics Abstracts
07.65 E

MESURES OPTIQUES SOUS ULTRA-VIDE A BASSES TEMPÉRATURES SUR COUCHES MINCES PRÉPARÉES IN SITU

V. NGUYEN VAN et S. FISSON

Laboratoire d'Optique des Solides *, Université Pierre et Marie Curie,
4, place Jussieu, 75230 Paris Cédex 05, France

(Reçu le 1^{er} août 1977, révisé le 28 novembre 1977 et accepté le 6 décembre 1977)

Résumé. — On décrit un dispositif permettant la fabrication de couches minces sous ultra-vide et la mesure *in situ* à différentes températures, entre 8 K et 350 K, de leurs facteurs de réflexion R et de transmission T pour des longueurs d'onde comprises entre 0,27 μm et 2 μm , ainsi que de leur résistance électrique. Le montage optique utilisé est comparé à un autre montage plus simple mais d'utilisation plus délicate. Les possibilités de ce dispositif sont illustrées dans le cas de couches minces d'Au déposées à 30 K.

Abstract. — We describe a system enabling the fabrication of thin films in ultra-high vacuum and the *in situ* measurement at various temperatures, between 8 K and 350 K, of their reflectivity R and transmissivity T for wavelengths comprised between 0.27 μm and 2 μm together with their d.c. resistivity. The optical set-up is compared to a simpler one. The possibilities of the system are illustrated by investigating thin Au films deposited at 30 K.

1. Introduction. — La nécessité d'effectuer des mesures optiques sous ultra-vide, sur des échantillons préparés *in situ* et donc exempts de toute contamination de surface, a conduit de nombreux expérimentateurs à mettre au point des montages optiques sous vide [1, 2]. L'intérêt croissant pour les solides désordonnés, microcristallins ou amorphes, que l'on peut obtenir sous forme de couches minces déposées par évaporation sur supports à basses températures, recristallisant ou cristallisant souvent à températures inférieures à l'ambiante, nous ont amenés à concevoir et à réaliser une installation à ultra-vide permettant de déposer des couches (métal, semiconducteur ou alliage) dans différentes conditions et de mesurer *in situ* leurs propriétés optiques et électriques en fonction de la température. Nous décrirons cette installation ainsi que les deux montages optiques que nous avons testés, et nous illustrerons ses possibilités dans le cas d'une couche d'Au.

2. Description de l'installation. — L'ensemble expérimental est composé d'une pompe ionique avec sublimateur de titane et panneau cryogénique (ce dernier augmentant la vitesse de pompage pendant l'évaporation), d'une enceinte à ultra-vide, d'un cryostat métallique à températures variables de 4,2 K à 350 K et d'une platine sur laquelle sont fixés tous les éléments nécessaires au montage optique. L'échantil-

lon (lame de verre ou de silice de dimensions $20 \times 50 \times 3$ mm sur laquelle est effectué le dépôt) est fortement serré sur un support mobile en cuivre, deux fils d'indium écrasés entre l'échantillon et le support assurant un bon contact thermique. Pour vérifier l'homogénéité de température de l'échantillon, la température est mesurée à ses deux extrémités à l'aide de deux thermocouples Au-Fe/chromel fixés avec des pastilles d'indium. Les écarts entre les deux valeurs ne dépassent jamais un degré ; pendant les mesures optiques, lorsque la température est stabilisée, ces écarts sont de l'ordre des incertitudes de mesure. Le porte-échantillon mobile est relié à la queue du cryostat, d'une part par l'intermédiaire de deux roulements à billes, d'autre part par une tresse souple en cuivre doré qui assure le transfert thermique. La température la plus basse obtenue sur l'échantillon est de 8 K. Une régulation permet de fixer la température de l'échantillon à n'importe quelle valeur dans les limites indiquées avec une stabilité de l'ordre d'un degré. Grâce à une commande magnétique, on peut basculer l'échantillon de la position horizontale (dépôt) à la position verticale (mesures).

Le dépôt se fait par évaporation à partir d'un ou deux creusets chauffés par effet Joule. On contrôle la vitesse d'évaporation de chacun des creusets par une micro-balance à quartz ; après étalonnage, on peut ainsi pré-régler avec une bonne approximation la concentration des alliages et l'épaisseur des dépôts.

La résistance électrique des échantillons est mesurée

* Equipe de Recherche associée au C. N. R. S.

in situ par la méthode classique des quatre points. Afin de ne pas perturber la température de l'échantillon, on a pris soin de mettre tous les fils de mesure ainsi que les thermocouples à la masse thermique avant de les fixer aux deux extrémités de l'échantillon sur des contacts d'Au avec sous-couche de Cr déposés au préalable sur les supports.

3. Montages optiques et mesures. — Nous avons choisi, pour pouvoir déterminer directement à chaque longueur d'onde les parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique complexe, de mesurer à la fois les facteurs de réflexion et de transmission en incidence (quasi) normale de couches semi-transparentes (leur épaisseur étant déterminée par ailleurs en fin d'expérience). La gamme spectrale choisie, qui doit permettre d'étudier à la fois les transitions interbandes et les transitions intrabandes des matériaux considérés, comprend le visible, le proche infra-rouge et le proche ultra-violet ; pour des raisons de commodité expérimentale, elle s'étend de $0,27 \mu\text{m}$ à $2 \mu\text{m}$.

3.1 PREMIER MONTAGE OPTIQUE. — **3.1.1 Description.** — Nous avons été séduits par la simplicité de ce montage (Fig. 1), aussi l'avons-nous essayé en premier. Les mesures sont faites en incidence normale. Le miroir M_3 focalise le faisceau de sortie du monochromateur au voisinage du détecteur (qui se trouve en dehors de

FIG. 1. — Montage optique simplifié.
[Simplified optical set-up.]

l'enceinte), ceci afin de pouvoir utiliser, soit un photomultiplicateur, soit un détecteur infra-rouge de faibles dimensions. M_1 et M_2 sont deux séparatrices en silice de facteurs de réflexion r_1 et r_2 et de transmission t_1 et t_2 . Le détecteur a été primitivement placé au point d'intersection des deux faisceaux I_R (faisceau réfléchi) et I_0 ou I_T (faisceau de référence ou faisceau transmis). Suivant que l'échantillon est en position horizontale ou verticale, on mesure soit $I_{t_1} r_2 = I_0$, soit $I_{t_1} r_2 T = I_T$ ou $I_{t_1} r_1 R = I_R$. On déduit alors R et T , à condition, cependant, qu'on ait $r_1 = r_2$ sur les deux lames semi-réfléchissantes M_1 , M_2 .

3.1.2 Discussion. — Le principal avantage de ce dispositif, outre sa simplicité, est qu'il permet d'obtenir R et T directement en valeurs absolues par le fait que les deux trajets des faisceaux direct et réfléchi sont symétriques. Malheureusement les inconvénients en sont nombreux. D'une part, les faisceaux I_0 ou I_T et I_R arrivent sur la surface du détecteur sous deux incidences différentes et ceci entraîne une erreur sur les mesures de R . Pour éviter cet inconvénient, nous avons monté le détecteur sur un goniomètre de telle sorte que la surface du détecteur puisse être placée dans chaque cas perpendiculairement soit au faisceau I_0 ou I_T , soit au faisceau I_R . D'autre part, pour mesurer alternativement I_0 et I_T ou I_R à chaque longueur d'onde, il est chaque fois nécessaire de basculer l'échantillon. Après chaque basculement, il n'est jamais assuré que celui-ci est revenu dans la bonne position, car de trop nombreuses manipulations à basses températures peuvent endommager le mécanisme. En outre, les contraintes thermiques modifient aléatoirement la direction du faisceau réfléchi, sans qu'on puisse corriger les erreurs ainsi introduites.

3.2 DEUXIÈME MONTAGE OPTIQUE. — **3.2.1 Description.** — Avec ce deuxième montage (Fig. 2), les mesures sont faites en incidence quasi normale. Le faisceau de sortie du monochromateur MO est focalisé par le miroir M_0 au voisinage de l'échantillon E . Grâce à la séparatrice M_1 (lame Achromatique M. T. O. avec absorption, $r = t = 30\%$ pour $0,25 \mu\text{m} \leq \lambda \leq 2 \mu\text{m}$), on prélève une partie du flux incident I pour servir de faisceau de référence I_0 , qui suit le trajet $M_6 M_7 M_8$. Le rôle essentiel de cette séparatrice est d'éviter le basculement de l'échantillon ; en effet, les trois faisceaux transmis, réfléchi et de référence sont ainsi séparés. Le flux transmis par M_1 est en partie transmis par l'échantillon (I_T) et suit le trajet $EM_2 M_5$ et est en partie réfléchi (I_R) et suit le trajet symétrique $EM_3 M_4$. Lorsqu'on fait varier la température de façon notable (d'une centaine de degrés), les contraintes thermiques subies par l'échantillon peuvent modifier la direction du faisceau réfléchi I_R ; en agissant sur le miroir M_4 , qui se trouve à l'extérieur de l'enceinte à vide, on ramène I_R dans la position convenable. En outre, comme les trois faisceaux (I_0 , I_T , I_R) sont séparés spatialement, les mesures peuvent être facilement automatisées.

FIG. 2. — Montage optique complet.

[Final optical set-up.]

3.2.2 Principe des mesures. — Contrairement au montage décrit en 3.1, ce montage nécessite un étalonnage préalable à l'aide d'un échantillon dont on connaît le facteur de réflexion. Désignons par t_i et r_i les facteurs de transmission et de réflexion des différents miroirs et séparatrice, et par T et R les facteurs de transmission et de réflexion de l'ensemble support-couche mince.

a) *Mesure de T.* — Sans l'échantillon (échantillon en position horizontale) :

$$I_A = It_1 r_2 r_5 \quad \text{et} \quad I_0 = Ir_1 r_6 r_7 r_8,$$

soit

$$A = I_A/I_0 \quad [1].$$

— Avec l'échantillon (échantillon en position verticale) :

$$I_T = It_1 r_2 r_5 T = I_A \cdot T,$$

d'où

$$I_T/I_0 = (I_A \cdot T)/I_0 = A \cdot T \quad [2].$$

On en déduit T directement puisque A est connu. Le facteur d'appareil A , dépendant de la longueur d'onde et indépendant de la température, tient compte des facteurs de réflexion des miroirs intermédiaires. Il suffit de le mesurer une fois, pour toutes les longueurs

d'onde qui nous intéressent, et de contrôler qu'il ne varie pas avec le temps.

b) *Mesure de R.* — C'est ici que doit intervenir l'étalonnage à l'aide d'un échantillon de facteur de réflexion connu (R). En effet, on fait une première mesure avec l'étalon :

$$I_R^{\text{et}}/I_0 = (It_1 r_3 r_4 \cdot R_{\text{et}})/(Ir_1 r_6 r_7 r_8) = B \cdot R_{\text{et}}$$

avec

$$B = (t_1 r_3 r_4)/(r_1 r_6 r_7 r_8),$$

ce qui permet de déterminer B . Ensuite, avec l'échantillon :

$$I_R/I_0 = (It_1 r_3 r_4 \cdot R)/(Ir_1 r_6 r_7 r_8) = B \cdot R.$$

On en déduit R , puisque B est connu. Comme pour $A(\lambda)$, il suffit de déterminer $B(\lambda)$ une fois, pour toutes les longueurs d'onde, mais cette fois-ci il faut faire intervenir un échantillon étalon.

3.3 PROCÉDÉS DE MESURE. — Pour séparer les signaux optiques à la sortie du détecteur, nous utilisons un procédé analogue à celui décrit par Gerhardt et Rubloff [3]. A l'aide d'un obturateur, on laisse passer soit les faisceaux I_0 et I_T , soit les faisceaux I_0 et I_R . Un modulateur mécanique découpe ensuite les faisceaux I_0 et I_T (ou I_R) à la même fréquence, mais déphasés l'un par rapport à l'autre (Fig. 3). Deux

FIG. 3. — Dispositif électronique : a : signaux optiques sortant du détecteur ; b et c : signaux de commande des portes P₁ et P₂ ; b' et c' : signaux passant par les voies 1 et 2.

[Electronic device : a : optical signals from the detector ; b and c : signals operating P₁ and P₂ gates ; b' and c' : signals along 1 and 2 paths.]

monostables de type maître-esclave, synchronisés à l'aide d'un signal délivré par le modulateur, l'un MS_1 avec I_0 , l'autre MS_2 avec I_T (ou I_R), commandent deux portes électroniques P_1 et P_2 . Ainsi, P_1 ne laisse passer que le signal I_0 et P_2 , le signal I_T (ou I_R). Les signaux I_0 et I_T (ou I_R) sont détectés ensuite chacun par un amplificateur à détection synchrone PAR modèle 186. Un ratiomètre de grande dynamique permet d'obtenir, directement le rapport I_T/I_0 (ou I_R/I_0).

Ce procédé, simple quant à la mise en œuvre, permet cependant des mesures très précises. Il est préférable dans notre cas à la méthode habituelle qui consiste à avoir deux signaux de fréquences différentes et à utiliser un bon filtrage pour les séparer, car le filtrage devient très délicat lorsque l'un des deux signaux est très petit par rapport à l'autre. L'inconvénient de notre procédé réside dans la nécessité de choisir des détecteurs à faible temps de réponse qui délivrent des signaux carrés, tels que les photomultiplicateurs. Nous n'avons pu l'utiliser que pour les mesures entre $0,27 \mu\text{m}$ et $0,9 \mu\text{m}$.

Dans la gamme de $0,9 \mu\text{m}$ à $2 \mu\text{m}$, où le récepteur est une cellule PbS, nous avons été obligés d'avoir recours à une source de lumière stabilisée et d'enregistrer séparément, à l'aide d'un obturateur, les trois signaux I_0 , I_T et I_R .

3.4 PRÉCISION DES MESURES OPTIQUES. — Nous devons encore ici distinguer les mesures de T des mesures de R . Il nous est assez difficile de chiffrer directement la précision de nos mesures, qui dépend de l'alignement des faisceaux optiques et surtout de l'électronique que nous avons décrite ; nous l'évaluons par comparaison avec d'autres mesures.

a) *Précision sur T .* — Comme le facteur de transmission T est mesuré directement avec notre montage, nous comparerons les valeurs de nos mesures, faites à la température ambiante et après une entrée d'air dans l'installation à vide, à celles faites sur un spectrophotomètre Cary 14. L'écart entre les deux mesures est pratiquement négligeable. Nous concluons que la précision de nos mesures de T est de l'ordre de celle du Cary 14, c'est-à-dire 0,2 ou 0,3 %.

b) *Précision sur R .* — Dans notre cas, nous devons plutôt parler de la reproductibilité de nos mesures, qui est de l'ordre de 0,2 ou 0,3 %, surtout lorsqu'il y a une variation importante de la température ; on doit soigneusement vérifier, comme il a été dit, l'incidence du faisceau réfléchi sur le détecteur. Etant donné que nous utilisons les mesures de réflexion faites sur le Cary 14 avec l'accessoire de réflexion (système Strong) pour étalonner notre montage, nous devons tenir compte de la précision de ce spectrophotomètre. Nous admettons donc que, dans le pire des cas, la précision des mesures de R est de l'ordre de 0,5 %.

4. Résultats expérimentaux. — Pour illustrer les possibilités de notre montage, nous présentons les

résultats obtenus sur une couche d'Au déposée dans un vide de 10^{-8} torr sur un support de silice dont la température a été maintenue à 30 K pendant le dépôt. Son épaisseur, déterminée par interférences de rayons X [4] en fin d'expérience, est de $325 \text{ \AA}$. Sa résistivité

FIG. 4. — Facteurs de réflexion R en fonction de la longueur d'onde pour une couche d'or de $325 \text{ \AA}$ d'épaisseur ($0,27 \mu\text{m} \leq \lambda \leq 0,6 \mu\text{m}$).

[Reflection coefficient R versus wavelength λ for a $325 \text{ \AA}$ thick Au film ($0,27 \mu\text{m} \leq \lambda \leq 0,6 \mu\text{m}$).]

FIG. 5. — Facteurs de transmission T pour la même couche et dans le même intervalle spectral.

[Transmission coefficient T for the same film in the same spectral range.]

FIG. 6. — Facteurs de réflexion (R) et de transmission (T) pour la même couche, mais pour $0,6 \mu\text{m} \leq \lambda \leq 2 \mu\text{m}$.

[Reflection (R) and transmission (T) coefficient for the same film at larger wavelengths ($0.6 \mu\text{m} \leq \lambda \leq 2 \mu\text{m}$).]

était de $18,8 \mu\Omega\text{-cm}$ en fin de dépôt à 30 K, valeur très élevée due à l'état microcristallin de la couche ; elle tombe à $6,0 \mu\Omega\text{-cm}$ (toujours à 30 K) après un recuit à 350 K. Cette valeur est encore très supérieure à celles correspondant à des couches déposées sur support à température ambiante [5]. L'examen au microscope électronique confirme l'existence de très petits cristaux (100 à 200 Å) et de quelques craquelures.

Les figures 4, 5 et 6 représentent la variation avec la longueur d'onde λ entre $0,27 \mu\text{m}$ et $2 \mu\text{m}$ des facteurs de transmission T et de réflexion R de cette couche d'Or, mesurés juste après le dépôt à 30 K (courbes I), puis après un recuit à 350 K, d'abord à 300 K (courbes II),

puis de nouveau à 30 K (courbes III). En comparant les courbes I et III, on constate une influence notable du recuit à la fois sur le maximum de la transmission ($(\Delta T/T) = 0,22$) et sur le minimum de la réflexion ($(\Delta R/R) = 0,07$) ainsi que dans l'infra-rouge ; ces effets sont beaucoup plus importants que pour des couches d'Or déposées à la température ambiante [6]. L'influence proprement dite de la température, lorsque la couche a été recuite (courbes II et III), est assez marquée dans l'ultra-violet et le visible, mais pratiquement nulle dans l'infra-rouge, où les propriétés optiques sont liées aux électrons de conduction. Ceci peut sans doute être expliqué par la structure microcristalline particulière de ce dépôt.

5. Conclusion. — Le montage que l'on vient de décrire et dont on a illustré les possibilités dans le cas d'une couche d'Or déposée à basse température puis recuite, est destiné à l'étude *in situ* en fonction de la température, des propriétés optiques et électriques de couches minces amorphes et microcristallines déposées par évaporation sous vide dans différentes conditions. Ce montage, simple dans sa conception et son utilisation, permet d'obtenir, après étalonnage, des valeurs précises de la constante diélectrique complexe de ces couches dans une large gamme spectrale et à toute température entre 8 K et l'ambiante. Des mesures simultanées de résistivité permettent de suivre les éventuels réarrangements structuraux et changements de phase. On peut ainsi espérer obtenir d'utiles renseignements sur la variation des propriétés électroniques avec la structure atomique.

Bibliographie

- [1] CHASSAING, G. J., GRAVIER, P. E., SIGRIST, M. L. et PIERISNARD, R. J., *Le Vide* **161** (1972) 219.
- [2] GASPARINI, J. P., PHILIP, R. et FRAISSE, R., *Le Vide* **161** (1972) 224.
- [3] GERHARDT, U., RUBLOFF, G. W., *Appl. Opt.* **8** (1969) 305.
- [4] KIESSIG, H., *Ann. Phys.* **10** (1971) 769.
- [5] ABELES, F., NGUYEN VAN, V., *J. Physique Colloque*, **31** (1970) C 1.
- [6] THEYE, M. L., Thèse de Doctorat d'Etat, Paris (1968).